

지하수중의 요오드-129 방사능 분석

강문자, 정근호, 이완로, 박두원, 김희령, 이창우, 최근식

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

munkang@kaeri.re.kr

원자력 분야에서 관심의 대상이 되는 요오드 동위원소에는 요오드-125, 요오드-129과 요오드-131이 있으면 이중 요오드-129는 핵분열물질로 원자력발전 및 핵연료 재처리 과정에서 발생된다. 특히 원자력시설 배기체중에 요오드-131과 함께 포함될 가능성이 높으므로 배기체를 처리하는 활성탄에서의 요오드-129 방사능 분석이 요구된다. 그리고 원전에서 발생하는 중.저준위 폐기물을 처분장에 처분할 때 요오드는 테크네튬과 함께 이동성이 매우 큰 핵종으로 알려져 처분장 주변 환경 모니터링시 포함되어야 하는 핵종이다. 처분장 주변 지하수와 해조류가 요오드-129 방사능 분석 대상이 되고 있다. 요오드-129는 반감기가 1.57×10^7 년으로 매우 길며 27.8, 29.5, 33.6, 34.6과 39.6 keV의 낮은 감마 에너지나 X-선 영역의 에너지를 가지고 있다. 그러므로 다른 핵종들과 함께 존재하거나 분석시 LOD를 낮추기 위해서는 요오드-129를 화학적 방법으로 순수 분리해야 한다. 본 연구에서는 지하수 시료중 요오드-129를 산화.환원법과 음이온교환수지를 이용하여 화학적으로 분리하고 분리된 요오드-129를 LEGe (Low Energy Gamma Spectroscopy) 로 방사능을 측정하는 방법을 소개하고 처분장 주변 지하수중 요오드-129 방사능 분석 결과를 설명하고자 한다.

지하수 시료는 증발 농축하여 전체가 500 ml 이하로 되게 한 후 철, 코발트, 요오드 담체를 첨가하였다. 암모니아 용액으로 pH를 조절하여 철공침시켜 철과 악티늄 핵종 등을 제거하였다. 그리고 수산화나트륨 용액으로 코발트공침을 유도하여 코발트를 제거하였다. 서로 다른 화학종으로 존재하는 요오드를 NaOCl과 $H_2NOH \cdot HCl$, $Na_2S_2O_5$ 을 이용하여 산화.환원시켜 요오드 음이온 (I⁻) 형태로 고정시켰다. 음이온교환수지 칼럼을 준비하여 요오드 음이온을 분리.정제하고 PdCl₂를 첨가하여 용액중의 요오드를 PdI₂로 침전시켰다. PdI₂침전을 필터에 걸러 건조시킨 후 침전의 무게를 측정하여 회수율을 결정하였다. PdI₂ 침전을 플란켓에 고정시켜 LEGe로 측정하여 요오드-129 에너지 영역에서 피크의 counts를 구하였다. 이때 측정시간을 200,000초 이상 하였다. 요오드-129 추적자를 첨가하여 얻은 침전으로부터 분석한 요오드-129 스펙트럼은 그림 1과 같다.

요오드-129 측정시 효율은 정확한 농도의 요오드-129 추적자를 이용하여 PdI₂침전을 얻고 침전의 무게에 대한 측정 효율 그래프로부터 구하였다. 침전무게에 대한 측정 효율 그래프는 그림 2와 같고 4개의 요오드-129 시료로부터 얻은 침전 무게와 효율의 상관관계식은 $y = -0.000121x + 0.015780$ ($R^2 = 0.9886$)로 얻어졌다. 그리고 증류수에 알고 있는 농도의 요오드-129를 spike한 시료에 대해 위에서 설명한 방법으로 요오드 분리 실험을 하고 측정한 결과는 표 1에 나타내었다. Spiked 시료 모두 회수율은 84% 이상 얻어졌으며 방사능이 6.8 Bq/L로 비교적 낮은 농도의 경우 11%의 상대오차를 나타내었고 27.2와 133.3 Bq/L로 spiked 한 시료는 3% 이내의 오차로 결과가 잘 맞음을 알 수 있었다. 이 때 방사능 농도와 MDA (Minimum Detectable Activity)는 다음의 식으로 계산하였다.

$$A = \frac{\left(\frac{G}{t_s} - \frac{B}{t_b}\right)}{\frac{CE}{100} \times \frac{Y}{100} \times V}$$

$$MDA = \frac{4.65 \sqrt{\frac{B}{t_b} \times t_s}}{t_s \times \frac{CE}{100} \times \frac{Y}{100} \times V}$$

여기에서 A는 시료의 요오드-129 방사능 (Bq/L)이며 G는 시료의 gross counts, B는 바탕시료의 counts, t_s 는 시료의 계측 시간, t_b 는 바탕시료의 계측 시간이다. 그리고 CE는 계측 효율 (%), Y는 회수율 (%), V는 시료의 부피 (L)이다. 경주 처분장의 방사선환경 모니터링을 위한 지하수 시료에 대해서도 위의 방법으로 요오드-129 분석을 실시하였고 결과는 표 2에 나타내었다. 지하수 시료의 경우 시료 10 L를 사용하였으며 요오드-129 방사능 농도는 MDA 0.037 Bq/L 이하의 값이 얻어졌다. 그리고 앞으로 지하수와 해조류 시료중의 요오드-129 방사능에 대한 모니터링이 지속적으로 이루어져야 하겠다.

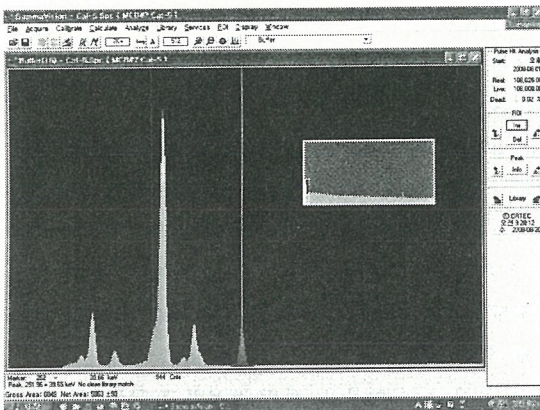


그림 1. 요오드-129의 감마 스펙트럼

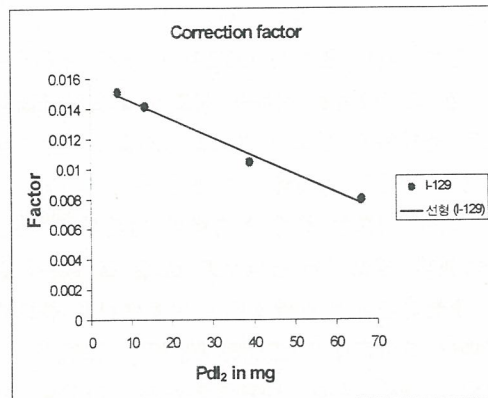


그림 2. 요오드-129 침전 무게에 대한 효율 곡선

표 1. Spiked 시료와 처분장 지하수 시료의 요오드-129 방사능 농도

시료	시료의 부피 (mL)	회수율 (%)	요오드-129 방사능 (Bq/L)	Spike한 방사능 (Bq/L)
Blank	50	87.9		
Spiked 1	50	83.8	6.0±0.48	6.8
Spiked 2	50	87.7	26.9±2.23	27.2
Spiked 3	50	85.7	129.6±7.87	133.3
DB1-1	10,000	15.3	<0.037	
KB-3				
PW2	10,000	16.0	<0.037	